

4695/FA

R E P U B L I Q U E F R A N Ç A I S E



# BREVET D'INVENTION

CERTIFICAT D'UTILITÉ - CERTIFICAT D'ADDITION

## COPIE OFFICIELLE

Le Directeur général de l'Institut national de la propriété industrielle certifie que le document ci-annexé est la copie certifiée conforme d'une demande de titre de propriété industrielle déposée à l'Institut.

Fait à Paris, le **15 JUIN 2001**

Pour le Directeur général de l'Institut  
national de la propriété industrielle  
Le Chef du Département des brevets

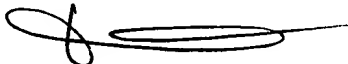
Martine PLANCHE

INSTITUT  
NATIONAL DE  
LA PROPRIÉTÉ  
INDUSTRIELLE

SIEGE  
26 bis, rue de Saint Petersburg  
75800 PARIS cedex 08  
Téléphone : 01 53 04 53 04  
Télécopie : 01 42 93 59 30  
<http://www.inpi.fr>

**THIS PAGE BLANK (USP 11)**

<p>REMISE DES PIÈCES DATE <u>17.08.2000</u> LIEU <u>94</u></p> <p>N° D'ENREGISTREMENT NATIONAL ATTRIBUÉ PAR L'INPI <b>0010694</b></p> <p>DATE DE DÉPÔT ATTRIBUÉE PAR L'INPI <b>17 AOÛT 2000</b></p>		<p><b>1 NOM ET ADRESSE DU DEMANDEUR OU DU MANDATAIRE</b> À QUI LA CORRESPONDANCE DOIT ÊTRE ADRESSÉE</p> <p>François ANDREEFF Ingénieur en Chef au Département Brevets INSTITUT FRANCAIS DU PETROLE 1 &amp; 4, avenue de Bois-Préau 92852 RUEIL-MALMAISON CEDEX FRANCE</p>	
<p><b>Vos références pour ce dossier</b> (facultatif) Mel-dist2-FA/SH</p>			
<p><b>C nfirmation d'un dépôt par télécopie</b> <input type="checkbox"/> N° attribué par l'INPI à la télécopie</p>			
<p><b>2 NATURE DE LA DEMANDE</b></p>		<p><b>Cochez l'une des 4 cases suivantes</b></p>	
Demande de brevet		<input checked="" type="checkbox"/>	
Demande de certificat d'utilité		<input type="checkbox"/>	
Demande divisionnaire		<input type="checkbox"/>	
<p><i>Demande de brevet initiale</i> N° _____ Date ____/____/____</p> <p><i>ou demande de certificat d'utilité initiale</i> N° _____ Date ____/____/____</p>			
Transformation d'une demande de brevet européen <i>Demande de brevet initiale</i>		<input type="checkbox"/> N° _____ Date ____/____/____	
<p><b>3 TITRE DE L'INVENTION (200 caractères ou espaces maximum)</b></p> <p>DISPOSITIF D'INJECTION D'UN FLUIDE PLACE ENTRE DEUX LITS SUCCESSIFS PERMETTANT DE REALISER ET DE DISTRIBUER SIMULTANEMENT UN MELANGE POLYPHASIQUE</p>			
<p><b>4 DÉCLARATION DE PRIORITÉ</b> <b>OU REQUÊTE DU BÉNÉFICE DE</b> <b>LA DATE DE DÉPÔT D'UNE</b> <b>DEMANDE ANTÉRIEURE FRANÇAISE</b></p>		<p>Pays ou organisation _____ N° _____</p> <p>Date ____/____/____</p> <p>Pays ou organisation _____ N° _____</p> <p>Date ____/____/____</p> <p>Pays ou organisation _____ N° _____</p> <p>Date ____/____/____</p> <p><input type="checkbox"/> S'il y a d'autres priorités, cochez la case et utilisez l'imprimé «Suite»</p>	
<p><b>5 DEMANDEUR</b></p>		<p><input type="checkbox"/> S'il y a d'autres demandeurs, cochez la case et utilisez l'imprimé «Suite»</p>	
Nom ou dénomination sociale		INSTITUT FRANCAIS DU PETROLE	
Prénoms			
Forme juridique		Organisme professionnel	
N° SIREN		. . . . .	
Code APE-NAF		. . . . .	
Adresse	Rue	1 et 4, avenue de Bois-Préau	
	Code postal et ville	92852	RUEIL-MALMAISON CEDEX
Pays		FRANCE	
Nationalité		Française	
N° de téléphone (facultatif)		01.47.52.60.00	
N° de télécopie (facultatif)		01.47.52.70.03	
Adresse électronique (facultatif)			

REMISE DES PIÈCES DATE <u>17.08.2000</u> LIEU <u>99</u> N° D'ENREGISTREMENT NATIONAL ATTRIBUÉ PAR L'INPI <b>0010694</b>		Réservé à l'INPI	
<b>Vos références pour ce dossier :</b> <i>(facultatif)</i>			
<b>6 MANDATAIRE</b>			
Nom		ANDREEFF	
Prénom		François	
Cabinet ou Société		INSTITUT FRANCAIS DU PETROLE	
N° de pouvoir permanent et/ou de lien contractuel			
Adresse	Rue	1 & 4, avenue de Bois-Préau	
	Code postal et ville	92852 RUEIL-MALMAISON	
N° de téléphone <i>(facultatif)</i>		01.47.52.62.84	
N° de télécopie <i>(facultatif)</i>		01.47.52.70.03	
Adresse électronique <i>(facultatif)</i>			
<b>7 INVENTEUR (S)</b>			
Les inventeurs sont les demandeurs		<input type="checkbox"/> Oui <input checked="" type="checkbox"/> Non Dans ce cas fournir une désignation d'inventeur(s) séparée	
<b>8 RAPPORT DE RECHERCHE</b>			
Établissement immédiat ou établissement différé		<input checked="" type="checkbox"/> Oui <input type="checkbox"/> Non	
Paiement échelonné de la redevance		<b>Paiement en trois versements, uniquement pour les personnes physiques</b> <input type="checkbox"/> Oui <input type="checkbox"/> Non	
<b>9 RÉDUCTION DU TAUX DES REDEVANCES</b>		<b>Uniquement pour les personnes physiques</b> <input type="checkbox"/> Requête pour la première fois pour cette invention <i>(joindre un avis de non-imposition)</i> <input type="checkbox"/> Requête antérieurement à ce dépôt <i>(joindre une copie de la décision d'admission pour cette invention ou indiquer sa référence) :</i>	
Si vous avez utilisé l'imprimé «Suite», indiquez le nombre de pages jointes			
<b>10 SIGNATURE DU DEMANDEUR OU DU MANDATAIRE-</b> (Nom et qualité du signataire) Rueil, le 4 août 2000		<b>INSTITUT FRANÇAIS DU PÉTROLE</b> Département Brevets 	
		<b>VISA DE LA PRÉFECTURE OU DE L'INPI</b> L. 	

**DÉSIGNATION DE L'INVENTEUR**

(si le demandeur n'est pas l'inventeur ou l'unique inventeur)

**DEPARTEMENT DES BREVETS**

26bis, rue de Saint-Petersbourg  
75800 Paris Cédex 08  
Tél. : 01 53 04 53 04 - Télécopie : 01 42 93 59 30

N° D'ENREGISTREMENT NATIONAL

0010694

**TITRE DE L'INVENTION :**

DISPOSITIF D'INJECTION D'UN FLUIDE PLACE ENTRE DEUX LITS SUCCESSIFS  
PERMETTANT DE REALISER ET DE DISTRIBUER SIMULTANEMENT UN MELANGE  
POLYPHASIQUE

**LE(S) SOUSSIGNÉ(S)**

François ANDREEFF  
Ingénieur en Chef au Département Brevets  
INSTITUT FRANCAIS DU PETROLE  
1 & 4, avenue de Bois Préau  
92852 RUEIL-MALMAISON CEDEX FRANCE

**DÉSIGNE(NT) EN TANT QU'INVENTEUR(S)** (indiquer nom, prénoms, adresse et souligner le nom patronymique)

BOYER Christophe,  
demeurant 66, rue des Gobins 69390 CHARLY FRANCE

COUPARD Vincent,  
demeurant 84, rue Paul Bert 69003 LYON FRANCE

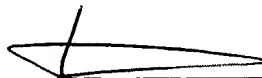
FANGET Bertrand,  
demeurant 177, rue Cochard 69560 SAINTE COLOMBES LES VIENNES FRANCE

**NOTA :** A titre exceptionnel, le nom de l'inventeur peut être suivi de celui de la société à laquelle il appartient (société d'appartenance) lorsque celle-ci est différente de la société déposante ou titulaire.

Date et signature (s) du (des) demandeur (s) ou du mandataire

**INSTITUT FRANÇAIS DU PÉTROLE**  
Département Brevets

Rueil, le 4/8/00



**FRANÇOIS ANDREEFF**  
Ingénieur en Chef

La présente invention concerne un dispositif d'injection d'un fluide secondaire placé entre deux lits granulaires successifs et permettant d'optimiser le mélange entre plusieurs fluides et la distribution dudit mélange, celui-ci s'effectuant généralement entre d'une part une phase liquide et une phase gazeuse issues du lit granulaire supérieur et d'autre part une phase injectée qui est généralement essentiellement gazeuse et comprenant le plus souvent au moins en partie de l'hydrogène. Sans sortir du cadre de l'invention, le fluide injecté peut également être une phase liquide. Lesdits systèmes d'injection, de mélange et de distribution sont généralement intégrés dans un réacteur à lit fixe dans lequel l'écoulement des fluides est à co-courant descendant à travers le ou lesdits lits de solides granulaires.

On parlera indifféremment dans la suite de la présente description de systèmes ou de dispositifs d'injection, de mélange et de distribution.

La présente invention trouve en particulier une application dans tous les cas :

- où les phases gazeuses sont largement majoritaires par rapport aux phases liquides c'est-à-dire où le rapport volumique entre l'ensemble des gaz et l'ensemble des liquides est souvent supérieur à 3 : 1 et habituellement inférieur à 400 : 1 ( $3 < \frac{\text{Gaz vol}}{\text{Liquide vol}} < 400$ )

- où les phases gazeuses sont minoritaires par rapport aux phases liquides c'est-à-dire où le rapport volumique entre l'ensemble des gaz et l'ensemble des liquides est souvent supérieur à 0.1 : 1 et habituellement inférieur à 1 : 1 ( $0.1 < \frac{\text{Gaz vol}}{\text{Liquide vol}} < 1$ ),

- où la réaction est fortement exothermique et nécessite l'introduction dans le réacteur d'un fluide supplémentaire, qui est souvent un gaz, pour refroidir le mélange gaz/liquide,

- où la réaction nécessite un contact étroit pour permettre la dissolution d'un composé le plus souvent gazeux (par exemple de l'hydrogène  $H_2$ ) dans la phase liquide.

La présente invention s'applique en particulier dans le domaine des systèmes de quench gaz/liquide ou d'injecteur étagé comme par exemple ceux employés pour la mise en œuvre des réactions d'hydrocraquage, d'hydrotraitement, d'hydrodésulfuration, d'hydrodéazotation, d'hydrogénations sélectives ou totales des coupes  $C_2$  à  $C_5$ , l'hydrogénation sélective des essences de vapocraquage, l'hydrogénation des composés aromatiques dans des coupes aliphatiques et/ou naphténiques, l'hydrogénation des oléfines dans des coupes aromatiques.

Elle trouve aussi son application pour mettre en œuvre d'autres réactions nécessitant un bon mélange d'une phase gazeuse et d'une phase liquide, par exemple les réactions d'oxydation partielle ou totale, les réactions d'amination, d'acétyloxydation, d'ammoxydation et d'halogénéation en particulier de chloration.

5

Dans le domaine spécifique des réactions d'hydrodésulfuration, d'hydrodéazotation, d'hydrocraquage pour atteindre des conversions poussées (pour obtenir un produit contenant par exemple 30 ppm (parties par million) de soufre ou moins) il est nécessaire d'avoir une bonne distribution du gaz et du liquide mais principalement du liquide sachant que l'on se situe  
10 avec des rapports volumétriques qui varient en général d'environ 3 : 1 à environ 400 : 1 et le plus souvent d'environ 10 : 1 à environ 200 : 1 et dans le cas de l'utilisation d'un quench un très bon contact entre le gaz introduit pour effectuer le refroidissement et les fluides du procédé mis en œuvre souvent dénommés fluides process.

15 La solution généralement proposée, lorsque que le fluide à distribuer traverse plusieurs lits catalytiques, consiste à mettre en œuvre des systèmes d'injection étagée d'une charge gazeuse entre deux lits catalytiques successifs traversés par un mélange gaz/liquide.

Les brevets US 3,353,924, US 3,855,068, US 3,824,080 et US 5,567,396 décrivent par  
20 exemple des systèmes d'injection de gaz étagée entre deux lits dans lesquels l'injection du gaz secondaire, le mélange gaz secondaire/écoulement primaire et la distribution du mélange sont découplés et s'effectuent successivement. Au contraire, dans les dispositifs décrits dans la présente demande les fonctions d'injection, de mélange et de distribution des deux fluides incidents se font simultanément dans le même système.

25

L'un des avantages lié aux dispositifs selon la présente invention est ainsi une diminution très importante du volume nécessaire pour ces trois opérations et/ou le quench. Ce gain de volume au niveau du dispositif d'injection, de mélange et de distribution a notamment pour avantage et  
30 conséquence de permettre l'augmentation dans le réacteur du volume disponible pour les lits de solides granulaires, lesdits solides présentant le plus souvent une activité catalytique.

Le brevet US 4,235,847 décrit selon un autre concept un système dans lequel deux injections secondaires sont possibles (une en gaz et une en liquide). En sortie de lit, l'écoulement gaz/liquide est séparé à travers un système de chicanes. Le liquide est collecté au niveau d'un

plateau de diamètre inférieur au diamètre du réacteur et le gaz est injecté en dessous de ce plateau dans le volume liquide collecté. Le mélange gaz/liquide (sous forme de brouillard) est alors récupéré en tête de tubes et injecté dans le lit à travers ces tubes. Ce système intègre la fonction mélange gaz/liquide et distribution du mélange au niveau d'un seul plateau mais présente l'inconvénient majeur d'une distribution limitée à un diamètre inférieur au diamètre du plateau à cause du système de chicanes. De plus au niveau des cheminées, le mélange étant récupéré à un seul niveau, ce plateau pose des problèmes de flexibilité d'utilisation avec le débit liquide. Enfin l'échange de chaleur s'effectue d'abord du gaz vers le gaz et ensuite du gaz résultant vers le liquide. Pour une même aire interfaciale développée il y a donc une perte d'efficacité en transfert de chaleur gaz/liquide par rapport au cas où le gaz secondaire (froid) est directement mis en contact avec le liquide.

Plus précisément, l'invention concerne un dispositif d'injection d'un fluide secondaire placé entre deux lits granulaires successifs permettant de réaliser et de distribuer un mélange polyphasique entre le fluide secondaire et un fluide ou un mélange de fluides issu du lit granulaire supérieur. Le dispositif comporte une chambre d'injection du fluide secondaire, l'injection dudit fluide secondaire étant effectuée au niveau dudit dispositif, et des moyens permettant la mise en contact dudit fluide secondaire et d'au moins une partie du fluide ou du mélange de fluides issu du lit granulaire supérieur ainsi que la distribution simultanée du mélange résultant de ladite mise en contact vers le lit granulaire inférieur.

En particulier, ledit fluide secondaire pourra être une phase gazeuse comprenant au moins en partie de l'hydrogène.

Dans un premier mode de réalisation de l'invention, lesdits moyens de mise en contact et de distribution sont des cheminées dédiées au passage de la fraction gazeuse du fluide ou du mélange de fluide issu du lit granulaire supérieur. Elles traversent de façon étanche la chambre, et leur hauteur est en général supérieure à la hauteur maximale atteinte par le niveau liquide. De plus elles sont avantageusement munies dans leur partie supérieure d'une plaque empêchant l'écoulement de la partie liquide du fluide ou du mélange de fluide issu du lit granulaire supérieur à travers lesdites cheminées.

De plus les deux types de cheminées seront avantageusement prolongés d'une distance  $h_i$  en dessous de la chambre.



Dans un autre mode de réalisation de l'invention, lesdits moyens de mise en contact et de distribution sont

- des cheminées permettant le passage du fluide secondaire vers la partie supérieure de ladite chambre, ladite partie se présentant le plus souvent sous la forme d'un plateau,

- 5 - des tubes ou canaux mélangeurs (224), traversant de façon étanche la chambre, munis d'orifice dans leur partie supérieure permettant le passage et le mélange du fluide secondaire et d'au moins une partie du fluide ou du mélange de fluides issu du lit granulaire supérieur.

Les canaux mélangeurs seront là encore avantageusement prolongés d'une distance  $h_1$  en dessous de la chambre.

10

L'invention concerne aussi un réacteur à lit fixe comportant :

- au moins un lit supérieur de solides granulaires,
- au moins un dispositif selon l'une des revendications 1 à 7 placé en aval dudit lit supérieur, permettant de réaliser le mélange et la distribution d'un fluide secondaire
- 15 et d'un fluide ou d'un mélange de fluides issu dudit lit,
- au moins un lit de solides granulaires placé en aval dudit dispositif,
- au moins une ligne séparée d'injection dans la chambre dudit dispositif du fluide secondaire, ladite injection se faisant sensiblement perpendiculairement par rapport à l'axe dudit réacteur.

- 20 Dans ce réacteur, les phases liquides et gazeuses circulent le plus souvent en écoulement co-courant descendant à travers le ou lesdits lits de solides granulaires.

De façon préférée, lesdits lits de solides granulaires comportent au moins un solide granulaire présentant une activité catalytique.

- 25 Les dispositifs et/ou réacteur décrit dans la présente demande présente de façon plus particulière une utilisation dans des procédés d'hydrodésulfuration, d'hydrogénation sélective ou d'hydrodéazotation

- 30 D'autres avantages et caractéristiques de l'invention apparaîtront mieux à la lecture de la description donnée ci-après à titre d'exemple de réalisation.

Les figures 1 et 2 schématisent deux exemples de réalisation du réacteur permettant d'inclure les dispositifs selon la présente invention.

Les figures 3 et 4 illustrent deux modes de réalisation selon l'invention d'un dispositif d'injection étagée ou de quench fonctionnant entre deux lits catalytiques successifs et pouvant être placés par exemple dans un des réacteurs représentés sur les figures 1 et 2.

5 Selon un mode de réalisation d'un réacteur selon l'invention, un interne de distribution (100) est placé en tête du réacteur à lit fixe fonctionnant en écoulement liquide seul ou liquide/gaz co-courant descendant. Dans le cas où le réacteur fonctionne en écoulement liquide/gaz, la charge liquide et la charge gazeuse sont injectées, de façon séparée dans l'interne de distribution situé en tête de réacteur et à l'amont du premier lit. Une fraction du gaz injecté  
 10 dans le réacteur est injectée à un niveau intermédiaire du réacteur entre deux lits successifs à travers le système d'injection, de mélange et de distribution objet de la présente invention. Ce premier schéma d'utilisation des internes de distribution selon la présente invention est présenté sur la figure 1. A l'amont de la tête du réacteur, un ballon peut être ajouté en association au système de distribution pour optimiser l'échange de matière entre la phase  
 15 liquide et la phase gaz (figure 2). Ce ballon sera extérieur au réacteur. Dans ce mode de réalisation, la charge liquide et la charge gaz sont mise en contact par bullage dans ce ballon et ressortent séparément du ballon pour être injectée séparément dans le réacteur.

Plus précisément, le réacteur (60) schématisé sur la figure 1 est un réacteur à lit fixe à deux lits  
 20 superposés qui fonctionne en écoulement descendant co-courant.

La charge liquide (1) est injectée à proximité de la tête du réacteur au niveau de l'interne de distribution (100) à travers la ligne (3). Cet interne de distribution pourra être choisi parmi tout dispositif de mélange et/ou de distribution connu de l'art antérieur. Avantagement, le système de distribution placé en tête du réacteur est un dispositif tel que celui décrit dans la  
 25 demande de brevet déposée par le demandeur le même jour que la présente demande.

La charge gazeuse (2) est injectée à deux niveaux en amont du réacteur (60) : en tête du réacteur par la ligne (7) et au niveau intermédiaire du réacteur par la ligne (9), à travers un interne de distribution (200 ou 220) disposé entre les deux lits successifs. En cas de montée en pression dans l'interne de distribution (100) et dans la ligne (3), un système de compensation  
 30 de pression (14) (composé d'une vanne de régulation asservie à un capteur de pression différentiel) permet d'évacuer une partie du débit liquide vers la ligne (2) et la tête du réacteur. La répartition du débit gazeux injecté entre les lignes (7) et (9) est contrôlé à l'aide des vannes de régulation (10) et (11). Le débit gazeux injecté dans le réacteur (60) par la ligne (7) est habituellement compris entre 30 et 70 % molaire du débit molaire total du gaz injecté dans le

réacteur (60), en (9) ce débit est compris entre 30 et 70 % molaire du débit molaire total du gaz injecté dans le réacteur (60). Après la réaction le produit est récupéré par la ligne (15).

Le réacteur (60) décrit dans la figure 2 est un réacteur à lit fixe à deux lits superposés qui fonctionne en écoulement descendant co-courant.

La charge liquide (1) est injectée en tête du réacteur. La charge gazeuse (2) est injectée à deux niveaux en amont du réacteur (60) : en tête du réacteur par la ligne (7) et au niveau intermédiaire du réacteur par la ligne (9), à travers un interne de distribution (200 ou 220) disposé entre les deux lits successifs. Pour optimiser l'échange de matière entre la charge gazeuse et la charge liquide en amont du réacteur une fraction de la charge gazeuse injectée en tête est injectée à travers la ligne (8) et un ballon tampon (50). La répartition du débit gazeux injecté entre les lignes (7), (8) et (9) est contrôlée à l'aide des vannes de régulation (10) et (11). Le débit gazeux injecté dans le réacteur (60) par la ligne (7) est compris entre 0 et 70 % molaire du débit molaire gazeux total injecté dans le réacteur (60), le débit gazeux injecté par la ligne (8) est compris entre 0 et 70 % molaire du débit molaire gazeux total injecté dans le réacteur (60) et le débit gazeux injecté par la ligne (9) est compris entre 30 et 50 % molaire du débit molaire gazeux total injecté dans le réacteur (60). En entrée du réacteur, la charge liquide peut être directement injectée au niveau de l'interne de distribution (100) situé en tête de réacteur à travers la ligne (3) ou être injectée, à travers la ligne (4), dans le ballon tampon (50) avant de rejoindre l'interne de distribution (100) à travers la ligne (13). La fraction du débit de charge liquide injecté dans le réacteur par la ligne (4) est compris entre 1 et 99 % massique du débit total liquide injecté dans le réacteur et la fraction du débit de charge liquide injecté dans le réacteur par la ligne (3) est compris entre 99 et 1 % massique du débit total liquide injecté dans le réacteur. Après la réaction le produit est récupéré par la ligne (15).

Pour l'injection étagée de la charge gazeuse à un niveau intermédiaire inter-lit, deux modes de réalisation de l'invention sont proposés, à titre illustratifs et non limitatifs. Ils permettent par exemple d'injecter une phase gaz au niveau intermédiaire d'un réacteur à lit fixe fonctionnant en écoulement descendant de liquide seul ou d'un mélange gaz/liquide. L'application de ce système peut être l'injection étagée d'hydrogène dans un réacteur d'hydrogénation sélective ou dans un réacteur d'hydrodésulfuration d'une charge type gazole. Le but est d'effectuer également un transfert de chaleur en injectant la charge gazeuse à plus basse température que l'écoulement principal dans le réacteur. La charge gazeuse joue ainsi avantageusement le rôle de gaz quench. La particularité des systèmes d'injection étagée proposés dans la présente

invention est d'intégrer simultanément la fonction mélange du gaz injecté avec l'écoulement principal et la fonction distribution du mélange résultant avant le lit inférieur.

Les figures 3 et 4 montrent schématiquement deux modes de réalisations différents de tels systèmes d'injection étagés.

Selon le figure 3, le fluide comprenant habituellement une phase mixte liquide/gaz récupéré du lit supérieur (203), s'écoule alors à travers des cheminées (204) qui traversent une chambre d'injection de gaz (201) avant d'être injecté dans le lit inférieur (205). Ces cheminées (204) sont en communication avec la chambre d'injection du gaz (201) au travers d'orifices situés de part et d'autre de chaque cheminée. Ainsi le gaz injecté va se mélanger au niveau de chaque cheminée d'injection. La chambre d'injection du gaz est alimentée par une entrée latérale (202).

Le gaz résiduel issu du lit supérieur (203) sera lui évacué à travers des cheminées (206) qui traversent de façon étanche la chambre d'injection du gaz (201).

Pour le premier système (200) d'injection de gaz étagée, décrit à la figure 3, le principe consiste à récupérer le mélange gaz/liquide issu du lit supérieur (203), sur la paroi supérieure de la chambre (201) où un niveau liquide va s'établir naturellement par gravité. Le liquide s'écoule à travers des cheminées (204) qui traversent une chambre d'injection du gaz (201). Cette chambre est alimentée par une conduite (202) à travers la paroi latérale du réacteur en au moins un point. Le gaz est alors injecté depuis cette chambre (201) dans l'écoulement liquide au travers d'orifices (208) répartis sur les parois des cheminées (204). Le mélange gaz/liquide s'effectue donc au sein des cheminées qui correspondent aux points d'injection du mélange dans le lit inférieur. Ainsi les fonctions mélange et distribution sont simultanées. Ces cheminées sont donc avantageusement munies d'orifices (208) sur les parois latérales pour mettre en contact le gaz injecté avec l'écoulement liquide. Le diamètre de ces cheminées est calculé selon toute technique ou méthode connues de l'homme du métier de façon à ce que ces cheminées ne soient pas en charge de liquide par exemple de façon à ce que la vitesse de liquide à l'intérieur soit inférieure à  $0,35\sqrt{g d_c}$ , où  $d_c$  est le diamètre d'une cheminée et  $g$  est l'accélération due au champ de la pesanteur. Ce diamètre est de manière générale compris entre 5 mm et 50 mm. Le diamètre des orifices est avantageusement inférieur à 30 % du diamètre de la cheminée de façon à créer une perte de charge pour le liquide à travers ces trous plus de 10 fois supérieure à

la perte de charge principale à travers les tubes (204). Le nombre et le diamètre de ces trous sont calculés pour créer une perte de charge pour le gaz supérieure à  $10^3$  Pa et de préférence supérieure à  $5 \times 10^3$  Pa. Le nombre de trous par cheminées est le plus souvent compris entre 2 et 6, leur diamètre est de préférence compris entre 0,5 et 15 mm. La différence de hauteur entre les niveaux de ces trous est d'au moins 30 mm. La hauteur de la chambre d'injection du gaz est généralement comprise entre 100 et 300 mm. Cette hauteur a surtout un impact sur l'échange de matière gaz/liquide. La densité de cheminées au mètre carré est habituellement prise au moins supérieure à 80 cheminées/m<sup>2</sup> pour assurer une répartition des points d'injection gaz/liquide en tête de lit catalytique. Cette densité est en général comprise entre 100 et 700 cheminées/m<sup>2</sup> et de préférence comprise entre 150 et 500 cheminées/m<sup>2</sup>. Enfin les tubes (204) sont avantageusement prolongés d'une distance  $h_i$  en dessous de la chambre d'injection du gaz (201) afin d'éviter qu'une partie du liquide se propage sous la face externe de la chambre et de diminuer l'espace compris entre le point d'injection du mélange et l'entrée dans le lit. La distance  $h_i$  est comprise le plus souvent entre 10 et 50 mm. Afin d'éviter la séparation du mélange liquide/gaz avant son injection dans le lit, la distance entre le fond des tubes (204) et le haut du lit est comprise entre 0 et 50 mm, 0 exclu et de préférence entre 0 et 20 mm, 0 exclu.

Une deuxième série de cheminées (206), dont la hauteur par rapport à la paroi supérieure de la chambre (201) est supérieure à la hauteur maximale du niveau liquide, traversent la chambre d'injection gaz de façon étanche avant de déboucher à l'amont du lit secondaire. Ces cheminées ont pour but de récupérer le gaz résiduel issu du premier lit pour l'injecter en direction du lit secondaire. Ces cheminées sont recouvertes en partie supérieure d'une plaque circulaire (207) d'un diamètre égal à environ deux fois le diamètre de la cheminée (206) et située à une hauteur (par rapport à l'extrémité supérieure des cheminées) habituellement égale à la moitié du diamètre de la cheminée (206). Le diamètre de ces cheminées est compris entre 5 et 50 mm. En principe, dans le cas d'une injection étagée de gaz dans un réacteur à lit fixe, la quantité de gaz injecté en tête du réacteur n'est pas en excès par rapport à la stœchiométrie des molécules à traiter, la quantité gazeuse qui subsiste en sortie du lit (203) est donc faible par rapport à la quantité à injecter. La densité de ces cheminées est donc au moins 2 fois plus faible que la densité en cheminées à trous (204). Ces cheminées sont prolongées en dessous de la chambre d'injection gaz de la même hauteur  $h_i$  de façon à injecter tous les fluides au même niveau dans le lit inférieur.

Selon un autre mode de réalisation de l'invention, le principe de fonctionnement du mélangeur décrit par la figure 4 consiste à récupérer le mélange gaz/liquide issu du lit supérieur (223), sur un plateau formé par la paroi supérieure (220) d'une chambre d'injection du gaz (221) où un niveau liquide va s'établir naturellement par gravité. Le gaz est injecté dans la chambre d'injection (221). Il est ensuite injecté dans le volume liquide retenu par le plateau à travers des cheminées (222).

Le mélange gaz/liquide qui s'établit alors au dessus du plateau est injecté vers le lit inférieur (225) à travers des tubes ou canaux mélangeurs (224) qui sont munies d'orifices dans leur partie supérieure plongée dans le liquide et qui traversent de façon étanche la chambre (221). Enfin les canaux mélangeurs (224) seront avantageusement prolongés d'une distance  $h_i$  en dessous de la chambre gaz (222) afin d'éviter qu'une partie du liquide se propage sous la face externe de la chambre et de diminuer l'espace compris entre le point d'injection du mélange et l'entrée dans le lit.

Pour le deuxième système (220) d'injection étagée de gaz, décrit à la figure 4, le principe consiste donc à récupérer le mélange gaz/liquide issu du lit supérieur (223), sur la paroi supérieure de la chambre (220) où un niveau liquide va s'établir naturellement par gravité. Le gaz est injecté à travers une chambre d'injection (221) et des cheminées (222) dans le volume liquide retenu par le plateau. La chambre d'injection est alimentée par une conduite latérale (221) à travers la paroi du réacteur en au moins un point. Dans ce système, le gaz injecté est donc d'abord en contact avec le liquide sous forme d'écoulement à bulles et ensuite le mélange gaz injecté/liquide est en contact avec le gaz résiduel issu du lit amont dans les canaux mélangeurs (224). La fonction mélange s'effectue donc en deux étapes. De plus le mélange final gaz/liquide est effectué au niveau des points d'injection vers le lit inférieur, c'est à dire au niveau des canaux mélangeurs (224). Les fonctions mélange et distribution sont donc ici aussi simultanées.

Les cheminées destinées à l'injection du gaz (222) ont un diamètre en général compris entre 1 et 50 mm et une hauteur minimale de 50 mm pour éviter l'écoulement de liquide dans la chambre (220) à l'arrêt de l'unité. Ces cheminées sont avantageusement recouvertes d'une capsule dont le diamètre est compris entre 1 et 2 fois le diamètre de la cheminée, la hauteur est environ égale à la hauteur de la cheminée et l'espace situé entre le haut de la cheminée et la capsule est au moins égale au quart du diamètre de la cheminée. Le mélange gaz/liquide qui s'établit alors au dessus du plateau est injecté vers le lit inférieur (225) à travers des tubes ou

- canaux mélangeurs (224) qui sont munies d'orifices dans leur partie supérieure plongée dans le liquide et qui traversent de façon étanche la chambre (220). Le diamètre de ces tubes est calculé selon toute technique ou méthode connues de l'homme du métier de façon à ce que ces cheminées ne soient pas en charge de liquide par exemple de façon à ce que la vitesse de
- 5 liquide à l'intérieur soit inférieure à  $0.35\sqrt{gd_c}$ , où  $d_c$  est le diamètre d'un canal. Ce diamètre est compris entre 5 mm et 50 mm. Le diamètre des orifices est au plus inférieur à 75 % du diamètre du tube et compris entre 3 et 35 mm. La surface totale d'ouverture à travers ces trous est au moins égale à la surface de passage du canal. Le nombre de trous est supérieur à 2 et généralement compris entre 2 et 20. De manière préférée, ces trous sont répartis de façon
- 10 régulière sur la paroi latérale du canal mélangeur avec une distance minimum entre deux niveaux de 30 mm. La distance entre l'orifice inférieur d'un canal et la plaque supérieure de la chambre (221) est inférieure à la hauteur des cheminées d'injection du gaz (222). Enfin les canaux mélangeurs (224) sont avantageusement prolongés d'une distance  $h_i$  (226) en dessous de la chambre gaz (222) afin d'éviter les passages préférentiels du liquide sur la face inférieure
- 15 du plateau distributeur et de diminuer l'espace compris entre le point d'injection du mélange et l'entrée dans le lit. La distance  $h_i$  est comprise entre 10 et 50 mm. Ensuite afin d'éviter la séparation du mélange liquide/gaz avant son injection dans le lit, la distance entre le fond des tubes (224) et le haut du lit est le plus souvent comprise entre 0 et 50 mm, 0 exclu et de préférence entre 0 et 20 mm, 0 exclu.
- 20 La densité de cheminées (224) au mètre carré est prise au moins supérieure à 80 cheminée/m<sup>2</sup> pour assurer une répartition des points d'injection gaz/liquide en tête de lit catalytique. Cette densité sera en général comprise entre 100 et 700 cheminées/m<sup>2</sup> et de préférence comprise entre 150 et 500 cheminées/m<sup>2</sup>. La densité des cheminées (222) sera comprise entre 0.3 et 1 fois la densité des tubes ou canaux mélangeurs (224). Avantageusement et selon l'invention, le
- 25 gaz froid injecté peut ainsi servir de gaz de quench de la réaction catalytique.

## REVENDICATIONS

1°) Dispositif d'injection d'un fluide secondaire placé entre deux lits granulaires successifs permettant de réaliser et de distribuer un mélange polyphasique entre ledit fluide secondaire et un fluide ou un mélange de fluides issu du lit granulaire supérieur, caractérisé en ce qu'il comporte une chambre d'injection du fluide secondaire, en ce que l'injection dudit fluide secondaire est effectuée au niveau dudit dispositif, et en ce qu'il comporte également des moyens permettant la mise en contact dudit fluide secondaire et d'au moins une partie du fluide ou du mélange de fluides issu du lit granulaire supérieur et la distribution simultanée du mélange résultant de ladite mise en contact vers le lit granulaire inférieur.

2°) Dispositif selon la revendication 1 dans lequel ledit fluide secondaire est une phase gazeuse comprenant au moins en partie de l'hydrogène.

3°) Dispositif selon l'une des revendications 1 ou 2 dans lequel lesdits moyens de mise en contact et de distribution sont des cheminées (204) traversant ladite chambre d'injection et percées d'orifices (208) sur leur paroi latérale.

4°) Dispositif selon l'une des revendications précédentes comprenant des cheminées (206) dédiées au passage de la fraction gazeuse du fluide ou du mélange de fluide issu du lit granulaire supérieur, traversant de façon étanche la chambre, dont la hauteur est supérieure à la hauteur maximale atteinte par le niveau liquide, et munies dans leur partie supérieure d'une plaque empêchant l'écoulement de la fraction liquide du fluide ou du mélange de fluide issu du lit granulaire supérieur à travers lesdites cheminées.

5°) Dispositif selon l'une des revendications précédentes caractérisé en ce que les cheminées (204, 206) sont prolongés d'une distance  $h_t$  en dessous de la chambre.

6°) Dispositif selon l'une des revendication 1 ou 2 dans lequel lesdits moyens de mise en contact et de distribution sont

- des cheminées (222) permettant le passage du fluide secondaire vers la partie supérieure de ladite chambre,
- des tubes ou canaux mélangeurs (224), traversant de façon étanche la chambre, munis d'orifice dans leur partie supérieure permettant le passage et le mélange du



fluide secondaire et d'au moins une partie du fluide ou du mélange de fluides issu du lit granulaire supérieur.

7°) Dispositif selon la revendication 6 caractérisé en ce que les canaux mélangeurs sont prolongés d'une distance  $h_1$  en dessous de la chambre.

8°) Réacteur à lit fixe caractérisé en ce qu'il comporte :

- au moins un lit supérieur de solides granulaires,
- au moins un dispositif selon l'une des revendications 1 à 7 placé en aval dudit lit supérieur, permettant de réaliser le mélange et la distribution d'un fluide secondaire et d'un fluide ou d'un mélange de fluides issu dudit lit,
- au moins un lit de solides granulaires placé en aval dudit dispositif,
- au moins une ligne séparée d'injection dans la chambre dudit dispositif du fluide secondaire, ladite injection se faisant sensiblement perpendiculairement par rapport à l'axe dudit réacteur.

9°) Réacteur selon la revendication 8 dans lequel les phases liquides et gazeuses circulent en écoulement co-courant descendant à travers le ou lesdits lits de solides granulaires.

10°) Réacteur selon l'une des revendications 8 ou 9 caractérisé en ce que le ou lesdits lits de solides granulaires comportent au moins un solide granulaire catalytique.

11°) Utilisation du dispositif et/ou du réacteur décrit dans l'une quelconque des revendications précédentes dans des procédés d'hydrodésulfuration, d'hydrogénation sélective ou d'hydrodéazotation.

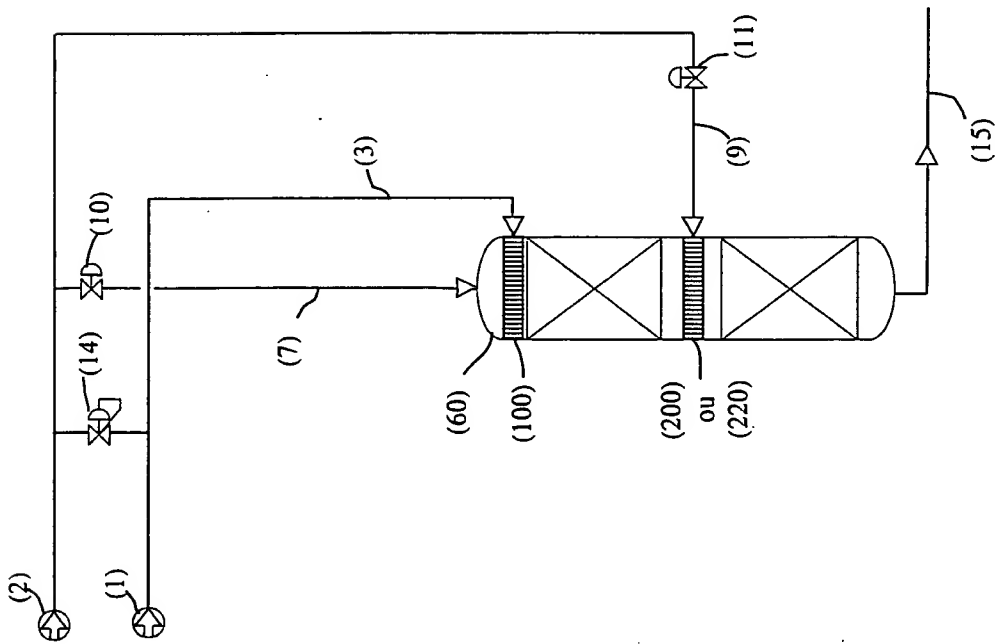


Figure n°1

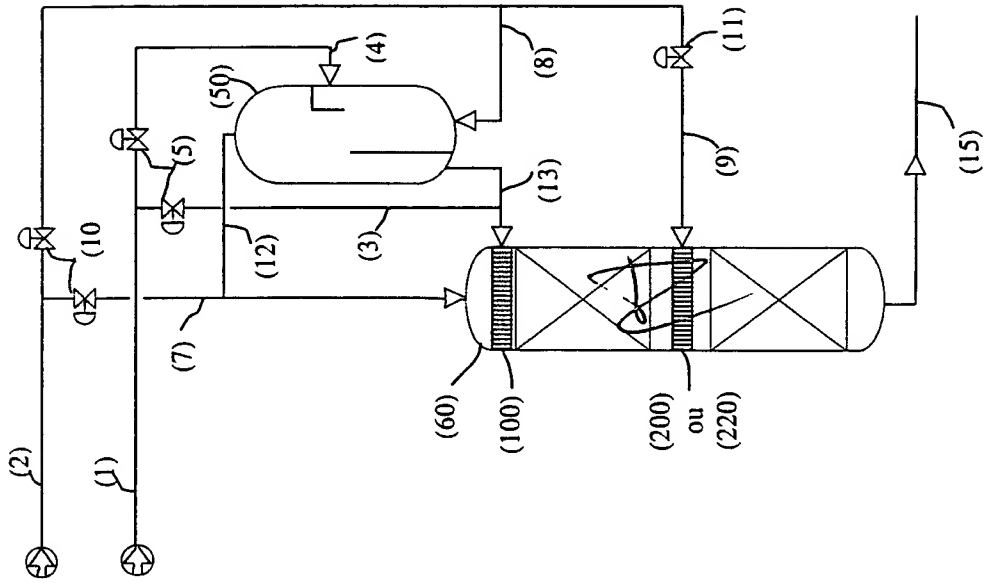


Figure n°2

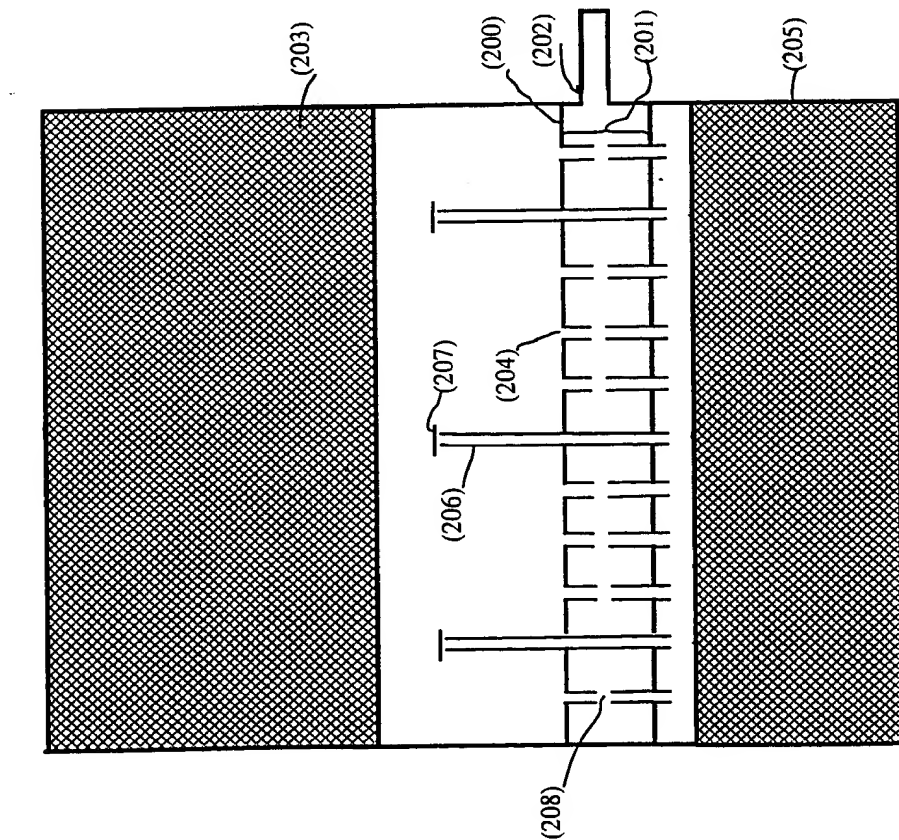


Figure 3

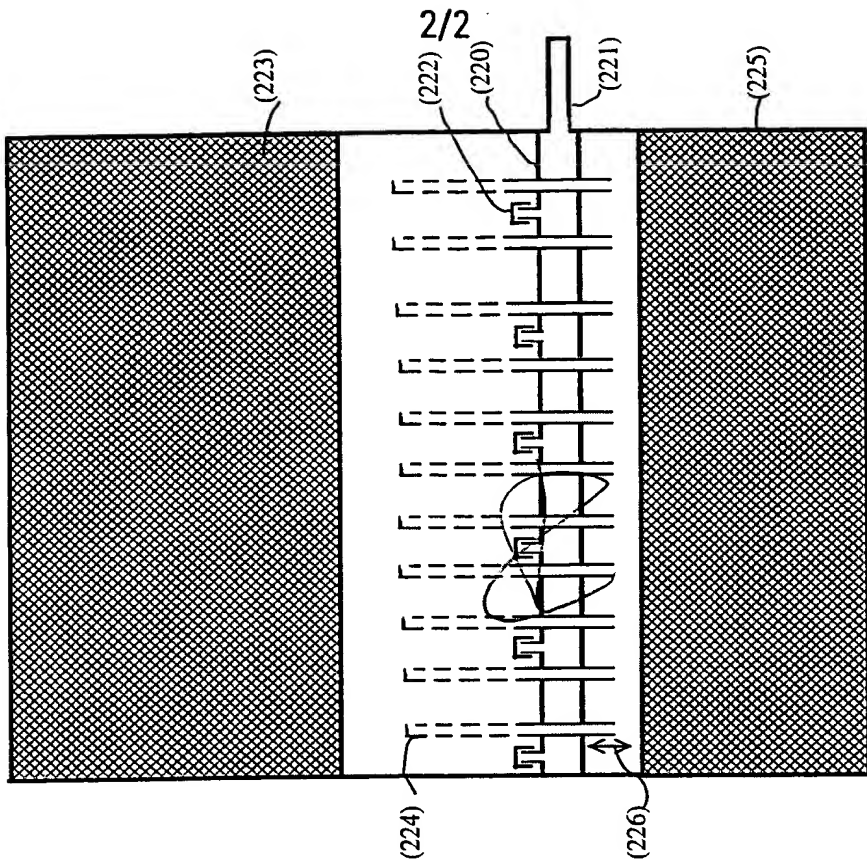


Figure 4

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Applicants : Christophe BOYER et al.

Filed : August 16, 2001

For: DISTRIBUTION DEVICE FOR PRODUCING A  
POLYPHASE MIXTURE AND ASSOCIATED  
REACTOR

MILLEN, WHITE, ZELANO & BRANIGAN, P.C.  
DOCKET NO. PET-1945